

PCT/EP

03 / 0 2 2 4 0



Europäisches
Patentamt

European
Patent Office

Office européen
des brevets

REC'D 15 APR 2003

WIPO

PCT

Bescheinigung

Certificate

Attestation

Die angehefteten Unterla-
gen stimmen mit der
ursprünglich eingereichten
Fassung der auf dem näch-
sten Blatt bezeichneten
europäischen Patentanmel-
dung überein.

The attached documents
are exact copies of the
European patent application
described on the following
page, as originally filed.

Les documents fixés à
cette attestation sont
conformes à la version
initialement déposée de
la demande de brevet
européen spécifiée à la
page suivante.

Patentanmeldung Nr. Patent application No. Demande de brevet n°

02004932.6

**PRIORITY
DOCUMENT**

SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

Der Präsident des Europäischen Patentamts;
Im Auftrag

For the President of the European Patent Office

Le Président de l'Office européen des brevets
p.o.

R C van Dijk

BEST AVAILABLE COPY



Anmeldung Nr:
Application no.: 02004932.6
Demande no:

Anmeldetag:
Date of filing: 05.03.02
Date de dépôt:

Anmelder/Applicant(s)/Demandeur(s):

Lofo High Tech Film GmbH
Weidstrasse 2
79576 Weil am Rhein
ALLEMAGNE

Bezeichnung der Erfindung/Title of the invention/Titre de l'invention:
(Falls die Bezeichnung der Erfindung nicht angegeben ist, siehe Beschreibung.
If no title is shown please refer to the description.
Si aucun titre n'est indiqué se référer à la description.)

Verfahren zur Herstellung von Polyolefinfolien

In Anspruch genommene Priorität(en) / Priority(ies) claimed /Priorité(s)
revendiquée(s)
Staat/Tag/Aktenzeichen/State/Date/File no./Pays/Date/Numéro de dépôt:

Internationale Patentklassifikation/International Patent Classification/
Classification internationale des brevets:

C08J/

Am Anmeldetag benannte Vertragstaaten/Contracting states designated at date of
filing/Etats contractants désignées lors du dépôt:

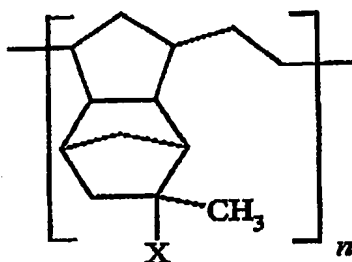
AT BE CH CY DE DK ES FI FR GB GR IE IT LI LU MC NL PT SE TR

1

Beschreibung

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von Polyolefinfolien durch Giessen einer Polymerlösung auf eine Unterlage.

- 5 Sie betrifft insbesondere ein Verfahren zur Herstellung von optischen Folien aus Polyolefinen der Formel



- 10 worin X eine polare Gruppe und n eine Zahl von 10 bis 1000 ist, durch Giessen von Lösungen der Polyolefine in organischen Lösungsmitteln auf eine Unterlage und Verdampfen der Lösungsmittel.

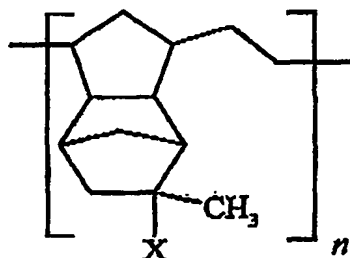
- 15 Polyolefine der obenstehenden Formel sind bekannt für ihre guten optischen Eigenschaften und beispielsweise unter dem Namen Arton® (X = Methoxycarbonyl, Hersteller: Japan Synthetic Rubber Co.) im Handel. Für verschiedene Anwendungen ist es erforderlich, optische Folien aus diesem Material herzustellen, die neben einer konstanten Dicke eine glatte und fehlerfreie Oberfläche aufweisen und frei von Schlieren sind und insbesondere eine möglichst geringe optische Verzögerung (optical retardation) aufweisen. Diese
- 20 Kombination von Eigenschaften kann, wenn überhaupt, nur durch ein Giessverfahren erzielt werden, bei dem eine Lösung des Polymeren auf eine Unterlage gegossen und durch Verdampfen des Lösungsmittels verfestigt und schliesslich als Folie von der Unterlage abgezogen wird. Es hat sich jedoch gezeigt, dass bei Anwendung von bei der Herstellung anderer optischer Folien (z. B. aus Cellulosetriacetat) nach dem Giessverfahren üblichen
- 25 Bedingungen die so erhaltenen Folien nicht allen Anforderungen genügen.

2

Aufgabe der vorliegenden Erfindung war daher die Bereitstellung eines Herstellungsverfahrens für optische Folien aus den oben genannten Polyolefinen, welches insbesondere Folien mit extrem geringer optischer Verzögerung liefert.

5 Erfindungsgemäss wird diese Aufgabe durch das Verfahren nach Patentanspruch 1 gelöst.

Es wurde gefunden, dass Folien sehr geringer optischer Verzögerung aus einem Polyolefin der Formel



10 worin X eine polare Gruppe, und n eine Zahl von 10 bis 1000 ist, durch Giessen einer Lösung des Polyolefins in einem organischen Lösungsmittel auf eine Unterlage und Verdampfen des Lösungsmittels hergestellt werden können, wenn

- 15 (i) das Polyolefin in Dichlormethan oder einem Dichlormethan enthaltenden Lösungsmittelgemisch gelöst und
- (ii) die so erhaltene Lösung in einer wenigstens 1 Vol.% Dichlormethandampf enthaltenden Atmosphäre bei einer Temperatur von nicht mehr als 35 °C auf eine glatte Unterlage gegossen wird, wobei eine im wesentlichen laminare Gasströmung über der
- 20 Giessunterlage aufrechterhalten wird,
- (iii) das Lösungsmittel bis zum Erhalt einer selbsttragenden Folie verdampft und
- (iv) die Folie von der Unterlage abgezogen und bei einer bis auf 70 bis 120 °C steigenden Temperatur getrocknet wird, ohne sie dabei zu verstrecken.

25 Als Dichlormethan enthaltende Lösungsmittelgemische können Gemische von Dichlormethan mit anderen leicht verdampfenden Lösungsmitteln wie beispielsweise Methanol eingesetzt werden, wobei das Dichlormethan zweckmässig den Hauptbestandteil darstellt.

Als Giessunterlage wird vorteilhaft ein umlaufendes poliertes Band, beispielsweise aus Edelstahl, eingesetzt. Die im wesentlichen laminare Gasströmung wird vorteilhaft dadurch erreicht, dass dichlormethanhaltiges Gas (vorzugsweise Luft) in der Nähe des Giessspaltes so zugeführt wird, dass sich das Gas in der gleichen Richtung wie die Giessunterlage fortbewegt und die Relativgeschwindigkeit zwischen Gas und Unterlage gering oder gleich Null ist. Im kontinuierlichen Betrieb wird das dichlormethanhaltige Gas vorteilhaft am Ende der Trocknungszone abgezogen und über einen Kondensator rezykliert. Der Dichlormethangehalt kann so auf einfache Weise durch Änderung der Kondensatortemperatur entsprechend der Dampfdruckkurve eingestellt und das kondensierte Dichlormethan zurückgewonnen werden.

Vorzugsweise werden nach dem erfindungsgemässen Verfahren Folien aus Polyolefinen der obenstehenden Formel hergestellt, in welchen X eine C_{1-4} -Alkoxycarbonylgruppe ist. Besonders bevorzugt sind solche Polyolefine, in denen X eine Methoxycarbonylgruppe ist.

Die Konzentration des Polyolefins in der Giesslösung beträgt vorzugsweise 10 bis 36 Gew.%, besonders bevorzugt 20 bis 30 Gew.%.

Die Dicke der erfindungsgemäss herstellbaren Folien beträgt vorzugsweise 50 bis 200 μm . Nach dem erfindungsgemässen Verfahren können Folien mit einer optischen Verzögerung von weniger als 10 nm bei 100 μm Dicke und einer Variation der optischen Verzögerung in Längs- und Querrichtung von nur ca. ± 1 nm (bei 100 μm Dicke) hergestellt werden.

Zur Erzielung eines besonders geringen Restgehaltes an Lösungsmittel ($\leq 1\%$) kann die Folie gegebenenfalls einem zweiten Trocknungsprozess unter im wesentlichen gleichen Temperaturbedingungen, aber vorteilhaft mit geringerer Geschwindigkeit, unterworfen werden.

Die folgenden Beispiele verdeutlichen die Durchführung des erfindungsgemässen Verfahrens, ohne dass darin eine Einschränkung zu sehen ist.

Beispiel 1**Herstellung einer Giessfolie aus ARTON® G mit einer Dicke von 100 µm**

Aus 5000 kg ARTON® G und 13182 kg Dichlormethan wurde unter Rühren und leichtem
5 Erwärmen eine homogene Lösung hergestellt und durch ein aus einer Lage Kalmuk-
Gewebe, einem Metallsieb mit 12 µm Maschenweite und einer Lage Baumwollbatist
zusammengesetztes Filter in einer Filterpresse filtriert. Die filtrierte Lösung wurde zur
Entgasung auf 40 °C erwärmt und dann auf 33 °C temperiert und unter einer Atmosphäre
mit einem Gehalt von ca. 3 Vol.% Dichlormethandampf und einer Temperatur von 34 °C
10 in der erforderlichen Dicke (Giessspalt ca. 200 µm) auf ein mit 3,6 m/min umlaufendes
poliertes endloses Stahlband von 60 m Länge und ca. 1,27 m Breite gegossen. Die Dichlor-
methan enthaltende Luft wurde im Bereich des Giessspaltes so zugeführt, dass eine lineare
Gasgeschwindigkeit in Bandrichtung von ca. 2–5 m/s (entsprechend einer Relativ-
geschwindigkeit von ca. ±1,5 m/s) resultierte. Die Temperatur im Bandkanal wurde zur
15 Abnahmestelle hin stufenweise auf ca. 60 °C erhöht und die gebildete Folie abgezogen.
Diese wurde anschliessend über eine Länge von ca. 260 m bei stufenweise von ca. 60 °C
im Bereich der ersten 120 m Länge bis auf ca. 115 °C im letzten Drittel ansteigender
Temperatur getrocknet und schliesslich nach dem Abkühlen auf 1010 mm Breite
beschnitten und aufgewickelt.
20 Nach Einstellung eines stationären Betriebszustandes wurde eine Folie mit einem
Lösungsmittelrestgehalt von ca. 1,45 Gew.% und einer optischen Verzögerung von ca.
10 nm erhalten.

Beispiel 2**25 Herstellung einer Giessfolie aus ARTON® G mit einer Dicke von 100 µm**

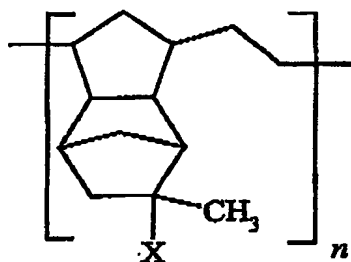
Analog zu Beispiel 1 wurde aus 3840 kg ARTON® G und 8939 kg Dichlormethan eine
Lösung hergestellt und mit einer Bandgeschwindigkeit von 4,9 m/min vergossen. Die so
erhaltene Folie mit einem Lösungsmittelrestgehalt von 1,34 Gew.%, einer optischen Ver-
30 zögerung von 9 nm und einer Trübung von 0,27% wurde zunächst aufgewickelt und später
in einem Durchlauftrockenschrank bei einer Temperatur von 125–132 °C über eine Länge
von 121 m mit einer Geschwindigkeit von 2 m/min nachgetrocknet. Nach dieser Nach-

trocknung betrug der Lösungsmittelrestgehalt 0,08 Gew.% und die optische Verzögerung 9,5 nm. Die Trübung war geringfügig auf 0,45% angestiegen.

6

Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung einer optischen Folie aus einem Polyolefin der Formel



worin X eine polare Gruppe und n eine Zahl von 10 bis 1000 ist, durch Giessen einer Lösung des Polyolefins in einem organischen Lösungsmittel auf eine Unterlage und Verdampfen des Lösungsmittels, dadurch gekennzeichnet, dass sie die Schritte

(i) Lösen des Polyolefins in Dichlormethan oder einem Dichlormethan enthaltenden Lösungsmittelgemisch,

(ii) Giessen der Lösung in einer wenigstens 1 Vol.% Dichlormethandampf enthaltenen Atmosphäre bei einer Temperatur von nicht mehr als 35 °C auf eine glatte Unterlage bei im wesentlichen laminarer Gasströmung,

(iii) Verdampfen des Lösungsmittels bis zum Erhalt einer selbsttragenden Folie und

(iv) Abziehen der Folie von der Unterlage und Trocknen bei einer bis auf 70 bis 120 °C steigenden Temperatur, ohne die Folie dabei zu verstrecken, umfasst.

2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass X eine C₁₋₄-Alkoxy-carbonylgruppe ist.

3. Verfahren nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, dass X eine Methoxycarbonylgruppe ist.

4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, dass die Konzentration des Polyolefins in der Giesslösung 20 bis 80 Gew.% beträgt.

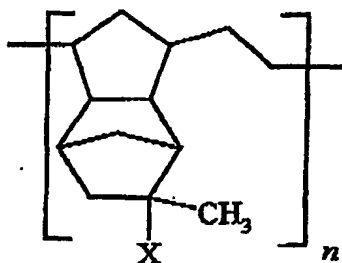
7

5. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, dass die Dicke der hergestellten Folie 50 bis 200 μm beträgt.

8

Zusammenfassung

Optische Folien aus Polyolefinen der Formel



worin X eine polare Gruppe, und n eine Zahl von 10 bis 1000 ist, werden durch Giessen von Dichlormethanolösungen auf eine glatte Unterlage und Verdampfen des Lösungsmittels unter kontrollierten Bedingungen hergestellt. Die Folien zeichnen sich durch besonders geringe optische Verzögerung (optical retardation) aus.

Basel, 5. März 2002

Dr. N. Riegler

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☒ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☒ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.